



TITLE:

3)「中性子磁気散乱:磁気構造から
スピン揺らぎまで」への基礎テス
ト(第42回 物性若手夏の学校
(1997年度))

AUTHOR(S):

加倉井, 和久

CITATION:

加倉井, 和久. 3)「中性子磁気散乱:磁気構造からスピン揺らぎまで」への基礎テスト(第42回 物性若手夏の学校(1997年度)). 物性研究 1997, 69(3): 325-337

ISSUE DATE:

1997-12-20

URL:

<http://hdl.handle.net/2433/96239>

RIGHT:

1997 物性若手夏の学校

「中性子磁気散乱 一磁気構造からスピン揺らぎまで」への基礎テキスト

加倉井和久

東京大学物性研究所附属中性子散乱研究施設

予定している講義の内容

- 1) 中性子の性質
- 2) 中性子の散乱（核散乱、磁気散乱）
- 3) 散乱による空間的相関の観測
- 4) 散乱による空間的、時間的相関の観測

予定しているサブゼミの内容

- 5) 中性子回折装置、分光装置
- 6) 磁気秩序の観測
- 7) 磁気揺らぎの観測
- 8) 中性子散乱全国共同利用

中性子の性質

中性子は1932年にチャドウィック (J. Chadwick) により発見された粒子であり、そのプローブとしての特色は次のように纏めることが出来る：

- (1) 陽子とほとんど同じ質量を持ち、その名が示すように電氣的に中性である。
- (2) 核相互作用により物質を作っている原子の核により散乱される。(核散乱)
- (3) スピン1/2を持つフェルミオンであるため磁気モーメントを持ち、磁氣的相互作用によりスピンを担う電子によっても散乱される。(磁気散乱)

大ざっぱに言ってしまうと中性子散乱とはこのような特色をもつ中性子を物質に当て、散乱前と後の中性子の状態(進行方向、エネルギー、スピンの向き)の変化を観測し、その中性子を散乱した物質の情報を得ようとするものである。このためには(2)と(3)の相互作用により各々の原子核又は電子から中性子がどのように散乱されるか、そしてこのような原子核又は電子の集合体から散乱された中性子はどのようにこの集合体の性質を反映するのかを知る必要がある。また技術的ではあるが中性子をどのように制御してこの情報を得るのかも実験的には重要であり、実際に得られる情報の精度に関わってくる。

中性子の散乱(核散乱、磁気散乱)

最初にある入射波 $\psi_{inc}=e^{ikr}$ が一つの固定された原子により弾性的散乱される過程を考える。

散乱された波は遠く離れたところで $\psi_{sc}=\frac{1}{r} f(\Omega) e^{ikr}$ と記述できる。

散乱を記述する微分散乱断面積 (differential cross-section) は

$\frac{d\sigma}{d\Omega}$ = (立体角 Ω 方向の小さい立体角 $d\Omega$ を1秒間に通過する散乱された粒子の数)
 / (入射方向に垂直な単位面積を1秒間に通過する入射された粒子の数) $\cdot d\Omega$
 と定義される。

弾性散乱なので入射粒子と散乱された粒子の群速度が同じであることを考慮すると

$$\frac{d\sigma}{d\Omega} = |f(\Omega)|^2 \quad (1)$$

となる。

また全散乱断面積 (total scattering cross-section) は

σ_{tot} = (1秒間に散乱された粒子の総数) / (入射方向に垂直な単位面積を1秒間に通過する入射された粒子の数)

と定義され

$$\sigma_{tot} = \int \frac{d\sigma}{d\Omega} d\Omega$$

である。

この散乱過程は粒子の k から k' 状態への移行として捉えることができる。この移行を表わすポテンシャル・エネルギーの行列の要素は粒子の波が e^{ikr} の平行波で与えられるときは

$$U_{k'k} = \frac{1}{V} \int dR e^{i(k-k')R} U(R)$$

で、 k から k' 状態への移行確立は、ボルン近似の範囲で

$$W_{k'k} = \frac{2\pi}{\hbar} |U_{k'k}|^2 \delta(E_{k'} - E_k)$$

と書ける。そして上記の $f(\Omega)$ と $U_{k'k}$ の関係は

$$f(\Omega) = \frac{k}{2\pi\hbar v_g} U_{k'k} \cdot V$$

と記述できることが容易に解る。但し V は box normalisation の体積、 v_g は粒子の群速度である。

(1) と v_g の定義を使い微分散乱断面積は

$$\frac{d\sigma}{d\Omega} = \frac{k^2}{4\pi^2} \left(\frac{dE}{dk} \right)^{-2} |U_{k'k} \cdot V|^2$$

と表示でき、粒子の波では $E = \frac{\hbar^2 k^2}{2m}$ なので

$$\frac{d\sigma}{d\Omega} = \left(\frac{m}{4\pi\hbar^2} \right)^2 |U_{k'k} \cdot V|^2$$

となる。

この式は原子がある粒子に対して持つポテンシャルがわかれば微分散乱断面積を計算できることを意味する。それではこれを原子による中性子散乱に応用してみよう。すでに述べたようにこの場合の散乱機構は原子の核による散乱か磁気モーメントとの磁気散乱がある。

核散乱

散乱体である原子核は、散乱波の波長に比べて十分小さいので、このポテンシャルは δ 関数で表記できる。このようなポテンシャルの $f(\Omega)$ は方向に依存しないので

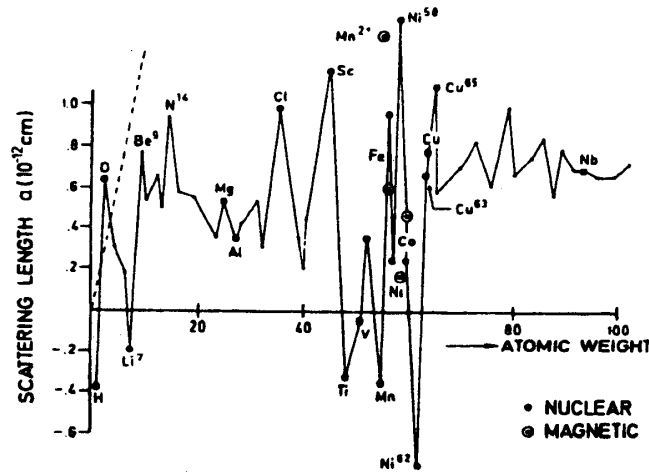
$$f(\Omega) = b$$

と書け、散乱振幅と呼ばれ、(1) から

$$\frac{d\sigma}{d\Omega} = b^2$$

となる。この散乱振幅の大きさはポテンシャル散乱と共鳴散乱により決まる。ポテンシャル散乱とは核力のポテンシャルの場により中性子が散乱されるもので、この部分はだいたい原子核の半径に比例する。その一方共鳴散乱は中性子が原子核と一時的に複合核をつくり、そこから放出されるという機構であるために、この部分は核の内部構造により敏感に変化する。この共鳴散乱のために中性子の散乱振幅の大きさは隣どうしの元素でも大きく異なり、同位元素でも異なり、時には散乱振幅の符号が負に

なることもある。(図参照) この中性子の散乱振幅の振る舞いは、X線のそれが電子の数に比例するのと異なり、特異であり、軽い元素の位置決め、水素一重水素を使用したコントラスト法等の中性子散乱の特徴となる主なる要因である。



磁気散乱

原子が 3d または 4f などの不対電子をもち、磁気モーメントをもつとき、その磁気モーメントと上記の中性子の磁気モーメントの相互作用により中性子が散乱される。その相互作用のエネルギーは

$$u_{\text{mag}} = -\mu_n B_c$$

で記述できる。但し μ_n は中性子の磁気モーメントで、

$$\mu_n = -g_N \mu_N \sigma$$

である。但し $g_N = 1.913$, μ_N は核マグネトンで、 σ は中性子のパウリ・スピンオペレーターである。

B_c は不対電子による磁場である。この磁場は一般には軌道円電流から生ずる磁場と電子スピンによる双極子磁場から成り立つ。

電子スピンの双極子磁場は

$$\mathbf{B}_s = \text{curl } \mathbf{A}, \quad \mathbf{A} = \frac{\mu_0}{4\pi} \frac{\boldsymbol{\mu}_e \times \hat{\mathbf{R}}}{R^2}$$

と書ける。そのときの $\boldsymbol{\mu}_e = -2\mu_B \mathbf{s}$ は電子の双極子モーメントで、 μ_B は Bohr マグネトンで \mathbf{s} は電子のスピン・オペレーターである。

軌道円電流から生ずる磁場は

$$\mathbf{B}_L = \frac{\mu_0}{4\pi} \mathbf{I} \frac{d\mathbf{l} \times \hat{\mathbf{R}}}{R^2} = \frac{\mu_0}{4\pi} \frac{2\mu_B}{\hbar} \frac{\mathbf{p} \times \hat{\mathbf{R}}}{R^2}$$

と記述でき、その時の \mathbf{p} は電子の運動量るので、相互作用を表わすオペレーターは

$$u_{\text{mag}} = -\frac{\mu_0}{4\pi} g_N 2\mu_B \mu_N \sigma \left\{ \text{curl} \left(\frac{\mathbf{s} \times \hat{\mathbf{R}}}{R^2} \right) + \frac{2}{\hbar} \frac{\mathbf{p} \times \hat{\mathbf{R}}}{R^2} \right\}$$

と記述できる。通常の 3d 電子では軌道運動量がない場合が多いので簡単化するため

に後者による散乱を無視し、弾性散乱の場合、磁場の期待値をオペレーターの代わりに導入して、 $\mathbf{s}(\mathbf{R}') = \mathbf{s}(\mathbf{R}') \cdot \hat{\mathbf{s}}$ と表現できるとすると、行列の要素は

$$u_{\text{mag}} = -\frac{1}{V} \mu_0 g_N 2\mu_B \mu_N \sigma \langle \hat{\mathbf{Q}} \times \hat{\mathbf{s}} \times \hat{\mathbf{Q}} \rangle F_{\text{mag}}(\mathbf{Q})$$

の様に書け、但し $F_{\text{mag}}(\mathbf{Q})$ は磁気形状因子と呼ばれ、

$$F_{\text{mag}}(\mathbf{Q}) = \int d\mathbf{R}' e^{i\mathbf{Q}\mathbf{R}'} s_c(\mathbf{R}')$$

定義され、 $F_{\text{mag}}(0)$ は原子の全スピンの絶対値を表わす。 $\mathbf{Q} = \mathbf{k} - \mathbf{k}'$ は散乱ベクトルで、 $\hat{\mathbf{Q}}$ は散乱ベクトルの単位ベクトルである。

これで散乱振幅は

$$f(\Omega) = \frac{m_n}{\pi \hbar^2} \mu_0 g_N \mu_N \mu_B \sigma \langle \hat{\mathbf{Q}} \times \hat{\mathbf{s}} \times \hat{\mathbf{Q}} \rangle F_{\text{mag}}(\mathbf{Q})$$

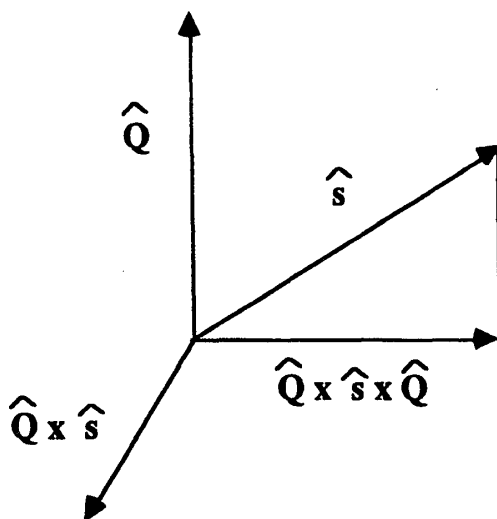
と記述できる。

$$\frac{m_n}{\pi \hbar^2} \mu_0 g_N \mu_N \mu_B \approx g_N r_e \quad \text{で } r_e \text{ は古典的な電子半径である。}$$

核散乱と異なり、この散乱振幅は散乱ベクトルとスピンの向きに大きく依存することが解る。

$\hat{\mathbf{Q}} \times \hat{\mathbf{s}} \times \hat{\mathbf{Q}}$ の意味

$\hat{\mathbf{Q}} \times \hat{\mathbf{s}} \times \hat{\mathbf{Q}}$ の意味は図から解るように $\hat{\mathbf{s}}$ を単位散乱ベクトル $\hat{\mathbf{Q}}$ に垂直な面に投影したものである。これは $\hat{\mathbf{s}} \perp \hat{\mathbf{Q}}$ の時に最大で1になり、 $\hat{\mathbf{s}} \parallel \hat{\mathbf{Q}}$ の時に最小で0になる。この磁気散乱特有な選択則は磁気秩序したスピンの方向を向いているのか、またはスピンの方向に揺らいでいるのかを決定するとき、重要な役割を果たす。



散乱強度の比較

核散乱の強度は上記の散乱長 b により決まるが、大抵の元素において大きさとして $\pm 5 \cdot 10^{-13} \text{ cm}$ である。磁気散乱は $F_{\text{mag}}(Q)$ が小さい Q のときに 1 のオーダーであること（例えば Fe の場合）と $g_N = -1.91$ 及び $r_e = 2.8 \cdot 10^{-13} \text{ cm}$ を考慮すると $\hat{s} \perp \hat{Q}$ の条件で同じく約 $5 \cdot 10^{-13} \text{ cm}$ となり、核散乱の強度と同等の強さが磁気散乱からも得られ、これが中性子散乱による磁性研究の基礎となっている。

散乱による空間的相関の観測

これまでは一個の原子による散乱を考えてきたが、次に固定された原子の集団からどのように散乱されるかを考える。その場合にどの原子も同じ強さの入射波 $e^{i\mathbf{k}\cdot\mathbf{r}}$ を散乱し（減衰がない）、散乱された波の散乱は無視できる（kinematical 近似）ものとする。この場合のポテンシャル・エネルギーの行列の要素は

$$U_{\mathbf{k}'\mathbf{k}} = \frac{1}{V} \int d\mathbf{r} e^{i(\mathbf{k}'-\mathbf{k})\cdot\mathbf{r}} \sum_i u(\mathbf{r}-\mathbf{r}_i)$$

で $u(\mathbf{r}-\mathbf{r}_i)$ は \mathbf{r}_i にある i 個目の原子のポテンシャルである。そして次の様な Fourier 変換を導入すると

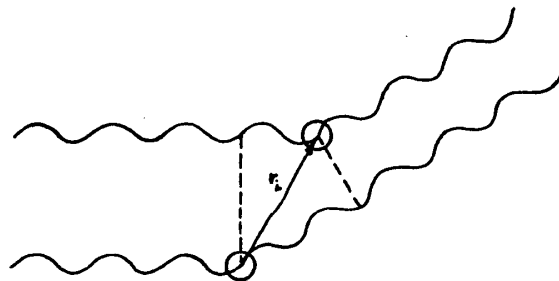
$$u(\mathbf{r}) = \frac{1}{V} \sum_{\mathbf{p}} u(\mathbf{p}) e^{i\mathbf{p}\cdot\mathbf{r}} = \frac{1}{(2\pi)^3} \int d\mathbf{p} u(\mathbf{p}) e^{i\mathbf{p}\cdot\mathbf{r}},$$

$$u(\mathbf{p}) = \int d\mathbf{r} u(\mathbf{r}) e^{-i\mathbf{p}\cdot\mathbf{r}}$$

$U_{\mathbf{k}'\mathbf{k}}$ は

$$U_{\mathbf{k}'\mathbf{k}} = u_{\mathbf{k}'\mathbf{k}} \sum_i e^{-i(\mathbf{k}'-\mathbf{k})\cdot\mathbf{r}_i} = u_{\mathbf{k}'\mathbf{k}} \sum_i e^{i\mathbf{Q}\cdot\mathbf{r}_i}$$

このように記述でき、全体の散乱振幅は個々の散乱振幅に複数の原子からの位相の足しあわせたものをかけたものであることが理解できる（図参照）。



$$\frac{\hat{\mathbf{k}} \cdot \mathbf{r}_i}{\lambda} \cdot 2\pi - \frac{\hat{\mathbf{k}'} \cdot \mathbf{r}_i}{\lambda} \cdot 2\pi = (\mathbf{k} - \mathbf{k}') \cdot \mathbf{r}_i$$

実際の強度はこの散乱振幅の自乗であり、一般に構造因子として

$$S(Q) = \frac{1}{N} \left| \sum_i e^{iQr_i} \right|^2 = \frac{1}{N} \sum_{i,j} e^{iQ(r_i - r_j)}$$

が定義される。但し N は散乱に寄与する原子の数である。実験から得られる構造に関する情報はすべてこの構造因子に含まれる。

構造因子の一例として周期的に並べられた一種類の原子からなる結晶のそれを考える。この場合の原子の位置は

$$\mathbf{r}_i = m_1 \mathbf{a}_1 + m_2 \mathbf{a}_2 + m_3 \mathbf{a}_3$$

但し m_1, m_2, m_3 は整数、で表記でき、周期条件を考慮すると構造因子は

$$\begin{aligned} S(Q) &= \frac{1}{N} \sum_{i,j} e^{iQ(r_i - r_j)} = \sum_i e^{iQr_i} \\ &= \sum_i e^{iQ(m_1 \mathbf{a}_1 + m_2 \mathbf{a}_2 + m_3 \mathbf{a}_3)} = \sum_{m_1} e^{im_1 Q \cdot \mathbf{a}_1} \sum_{m_2} e^{im_2 Q \cdot \mathbf{a}_2} \sum_{m_3} e^{im_3 Q \cdot \mathbf{a}_3} \end{aligned}$$

と書ける。この表現は $Q \cdot \mathbf{a}_i$ が 2π の整数倍のときのみには有意義な値になり、

$$Q \cdot \mathbf{a}_1 = n_1 \cdot 2\pi, \quad Q \cdot \mathbf{a}_2 = n_2 \cdot 2\pi, \quad Q \cdot \mathbf{a}_3 = n_3 \cdot 2\pi$$

のときに N になる。この式は Q を決める式になり、 Q が次の様に記述できるとこの条件を満たすことが解る。

$$\mathbf{Q} = 2\pi n_1 \frac{\mathbf{a}_2 \times \mathbf{a}_3}{(\mathbf{a}_1 \mathbf{a}_2 \mathbf{a}_3)} + 2\pi n_2 \frac{\mathbf{a}_3 \times \mathbf{a}_1}{(\mathbf{a}_1 \mathbf{a}_2 \mathbf{a}_3)} + 2\pi n_3 \frac{\mathbf{a}_1 \times \mathbf{a}_2}{(\mathbf{a}_1 \mathbf{a}_2 \mathbf{a}_3)}$$

ここで

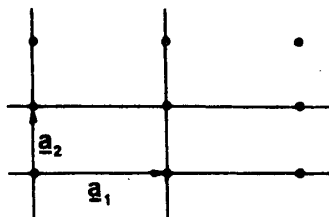
$$\mathbf{b}_1 = 2\pi \frac{\mathbf{a}_2 \times \mathbf{a}_3}{(\mathbf{a}_1 \mathbf{a}_2 \mathbf{a}_3)}, \quad \mathbf{b}_2 = 2\pi \frac{\mathbf{a}_3 \times \mathbf{a}_1}{(\mathbf{a}_1 \mathbf{a}_2 \mathbf{a}_3)}, \quad \mathbf{b}_3 = 2\pi \frac{\mathbf{a}_1 \times \mathbf{a}_2}{(\mathbf{a}_1 \mathbf{a}_2 \mathbf{a}_3)}$$

を逆格子の単位ベクトルと定義し、この単位ベクトルにより作られる周期的格子

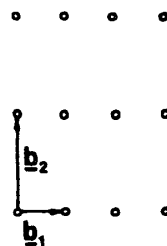
$$\mathbf{G} = n_1 \mathbf{b}_1 + n_2 \mathbf{b}_2 + n_3 \mathbf{b}_3 \quad (n_1, n_2, n_3 = 0, \pm 1, \pm 2, \dots)$$

を逆格子と呼ぶ。この逆格子の単位ベクトルは実空間の格子の面に垂直に立ち、その大きさは面間隔の逆数を 2π 倍したものである（図参照）。

実空間の格子



逆格子



この定義を使うと上記の周期的構造をもつ結晶の構造因子は

$$S(\mathbf{Q}) = N \sum_{\mathbf{G}} \delta_{\mathbf{Q}, \mathbf{G}}$$

と記述できる。この関係に一般に良く知られるブラッグ反射条件が含まれることは容易に示すことができる。

勿論核の配列の周期性と磁気モーメントの配列の周期性は同じである必要はない。その典型的な例が反強磁性スピン配列で、スピンの反平行に配列する方向には磁気モーメント配列の周期は核のその2倍になる。もしこの磁気散乱が上記の磁気選択則に従い散乱に寄与する条件を満たす場合には、上記の逆格子の概念から丁度核散乱に該当する散乱ベクトルの中間の位置に超格子反射と呼ばれる磁気散乱強度が反強磁性転移点以下で観測されることになる。このように中性子磁気弾性散乱はスピンの空間的相関に関して直接な情報を与えるので、上記の反強磁性は勿論のこと、フェリ磁性、ヘリカル磁性物質等の複雑な磁気秩序の解析に中心的な役割を果たしてきた。

非干渉性散乱

これまでは全部の原子が同じように散乱することを前提として話しをしてきた。しかし中性子散乱の場合には核散乱の章で述べたように、同原子においても核の構成の異なる同位元素で散乱振幅が違うので単一原子からなる固体においても上記の前提は成り立たない。それに加え核磁気モーメントを持つ核では一般の条件下ではそれが秩序していないために色々な方向を向いていると考えられ、それによっても核散乱の振幅が各原子において異なる。このように中性子散乱の場合には特殊な試料を除いては原理的に最初からある統計的な散乱振幅の異なる原子核の集合体を観測するためにそれを考慮した散乱寄与の区別が最初からなされてきた。

多種類の散乱振幅を持つ核からなる格子の全体の散乱振幅は

$$f(\mathbf{Q}) = \sum_i a_i e^{i\mathbf{Q}\cdot\mathbf{r}_i}$$

と記述できる。ここで散乱振幅の異なる核が統計的に分布していると考え、散乱振幅の平均値及びそれからの差を次の様に書ける。

$$\bar{a} = \frac{1}{N} \sum_i a_i$$

$$\delta a_i = a_i - \bar{a}$$

これらを上記の式に代入すると

$$f(\mathbf{Q}) = \bar{a} \sum_i e^{i\mathbf{Q}\cdot\mathbf{r}_i} + \sum_i \delta a_i e^{i\mathbf{Q}\cdot\mathbf{r}_i}$$

と書ける、強度の場合にはこれを自乗して

$$|f(\mathbf{Q})|^2 = |\bar{a}|^2 \left| \sum_i e^{i\mathbf{Q}\cdot\mathbf{r}_i} \right|^2 + \sum_{i,j} \overline{\delta a_i \delta a_j} e^{i\mathbf{Q}\cdot(\mathbf{r}_i - \mathbf{r}_j)}$$

となり、但しここではすでに統計的平均がとられている。第二項の中の $i \neq j$ の項は $\overline{\delta a_i} = 0$ のために消え、 $i=j, (\mathbf{r}_i - \mathbf{r}_j = 0)$ の項のみ残るので

$$|f(\Omega)|^2 = |\bar{a}|^2 \left| \sum_i e^{iQr_i} \right|^2 + \sum_i |\delta a_i|^2$$

である。ここで

$$|\delta a_i|^2 = |a_i - \bar{a}|^2 = |\bar{a}|^2 - \bar{a}^2 = \bar{a}^2 - \bar{a}^2$$

と構造因子の定義を使用すると中性子核散乱微分断面積は

$$\frac{d\sigma}{d\Omega} = |\bar{a}|^2 S(Q) + [\bar{a}^2 - \bar{a}^2]$$

と記述できることがわかる。構造因子を含む第一項は干渉性散乱、散乱ベクトルに依存しない第二項は非干渉性散乱と呼ばれる。この非干渉性散乱項は核散乱に特有なもので磁気散乱を扱う上では考慮する必要はないが、中性子散乱の特徴として触れておく。

散乱による空間的、時間的相関の観測

ここまでは散乱する原子がある仮想的な力で固定されていたと仮定し、散乱する原子のエネルギー状態が散乱により変化しないものとしてきた。エネルギー保存則によりこの際の中性子の散乱は弾性的であった。これからは現実により近づくためにこれらの仮定を取り除く。

原子が固定されていない場合には中性子と原子の量子力学的な二体問題を表わすシュレーディンガー方程式から出発する。それは

$$H\Psi(\mathbf{r}_n, \mathbf{R}) = E_{\text{tot}} \Psi(\mathbf{r}_n, \mathbf{R})$$

で表記でき、 E_{tot} は両方の全体エネルギー、 \mathbf{r}_n は中性子の、 \mathbf{R} は原子の座標である。ハミルトン・オペレーター H は

$$H = -\frac{\hbar^2}{2m_n} \Delta_n - \frac{\hbar^2}{2M} \Delta_R + U(|\mathbf{r}_n - \mathbf{R}|)$$

で、 M は散乱する原子の質量である。空間には異方性がないものとする。と U はお互いの座標関係を表わす

$$\mathbf{r} = \mathbf{r}_n - \mathbf{R}$$

の絶対値のみにしか依存しない。このような問題は古典力学からも知られているように、座標を \mathbf{r}_n と \mathbf{R} から、 \mathbf{r} と重心座標の

$$\mathbf{R}_{\text{cm}} = \frac{m_n \mathbf{r}_n + M \mathbf{R}}{m_n + M}$$

を導入することによりより簡単になる。

$M_{\text{tot}} = m_n + M$ を中性子と原子の総合質量、及び

$$m_n^* = \frac{m_n}{1 + \frac{m_n}{M}} \quad \text{を中性子の reduced mass とすると、ハミルトン・オペレーターは}$$

$$H = -\frac{\hbar^2}{2m_n^*} \Delta_r - \frac{\hbar^2}{2M_{\text{tot}}} \Delta_{R_{\text{cm}}} + U(r)$$

と書け、 $U(r)$ が \mathbf{R}_{cm} に依存しないことから

$$\Psi(\mathbf{r}_n, \mathbf{R}) = \Psi_n(\mathbf{r}) \Phi(\mathbf{R}_{\text{cm}})$$

の Ansatz によりシュレーディンガー方程式を

$$\left[-\frac{\hbar^2}{2m_n^*} \Delta_r + U(r) \right] \Psi_n(r) = E \Psi_n(r)$$

と

$$-\frac{\hbar^2}{2M_{\text{tot}}} \Delta_{R_{\text{cm}}} \Phi(R_{\text{cm}}) = (E_{\text{tot}} - E) \Phi(R_{\text{cm}})$$

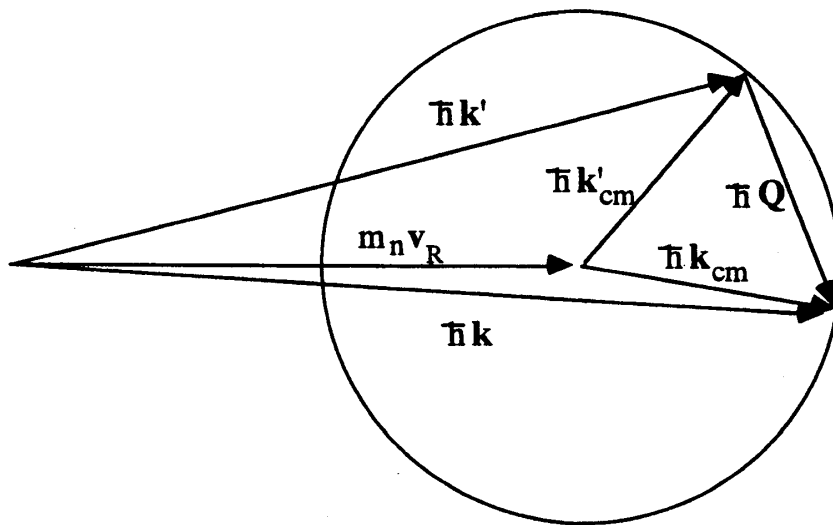
の二つの式に分けることができる。二つめの式は重心系の自由運動を表記するもので、一つめの式は空間的に固定されたポテンシャル $U(r)$ による弾性散乱問題で、上ですでに扱った問題に帰着したことになる。そのときの E は相互運動のエネルギーと解釈する。この考察により重心系から観測した微分散乱断面積は m_n を m_n^* で置き換えた

$$\left(\frac{d\sigma}{d\Omega}_{\text{cm}} \right) = \left(\frac{m_n^*}{2\pi\hbar^2} \right)^2 |U_{k'_{\text{cm}}k_{\text{cm}}} \cdot V|^2$$

で記述できることが解る。その際の波数ベクトルの大きさと相互運動のエネルギー E の関係は

$$E = \frac{\hbar^2 k_{\text{cm}}^2}{2m_n^*} \quad \text{である。}$$

勿論実験は実験室の系で観測されるので、これを実験室の系に変換する必要がある。ここで考慮しないといけないことは、重心系で弾性散乱であっても、実験室系では一般的には非弾性散乱になるということである。(図参照)



そのためにいままでの微分散乱断面積の定義を拡張して二次微分散乱断面積 (double differential cross-section or partial differential cross-section) を次の様に導入する。

$$\frac{d^2\sigma}{d\Omega d\omega} = (\text{立体角 } \Omega \text{ 方向の小さい立体角 } d\Omega \text{ を 1 秒間に通過する } \omega' \text{ と } \omega'+d\omega' \text{ の間})$$

のエネルギーを持つ散乱された粒子の数) / (入射方向に垂直な単位面積を1秒間に通過する入射された粒子の数・ $d\Omega d\omega'$)

この場合のエネルギー移行 $\hbar\omega$ は

$$\hbar\omega = \frac{\hbar^2 k^2}{2m_n} - \frac{\hbar^2 k'^2}{2m_n}$$

のように定義される。

勿論重心系においてはこの二次微分散乱断面積は $\omega_s \neq 0$ に全てゼロなので

$$\left(\frac{d\sigma}{d\Omega d\omega}\right)_{cm} = \left(\frac{m_n^*}{2\pi\hbar^2}\right)^2 |U_{\mathbf{k}'cm\mathbf{k}cm} \cdot \mathbf{V}|^2 \delta(\omega_{cm})$$

のように記述できる。散乱された粒子の流れを実験室系に変換するためには運動量に重心系の速度を足してやればよい。この変換のさいに重要な事は、運動量の移行

$\hbar\mathbf{Q}$ が

$$\mathbf{Q} = \mathbf{k} - \mathbf{k}' = \mathbf{k}_{cm} - \mathbf{k}'_{cm} = \mathbf{Q}_{cm}$$

でどちらの系でも同じことで、このことから

$$U_{\mathbf{k}'cm\mathbf{k}cm} = U_{\mathbf{k}'\mathbf{k}}$$

と書ける事で、実験室系と重心系の粒子のエネルギー移行の関係が

$$\hbar\omega = \frac{\hbar^2 k^2}{2m_n} - \frac{\hbar^2 k'^2}{2m_n} = \hbar\omega_{cm} - E_i + E_f$$

のように記述することができることを考慮すると、実験室系における二次微分散乱断面積は

$$\frac{d^2\sigma}{d\Omega d\omega} = \frac{k'}{k} \left(\frac{m_n^*}{2\pi\hbar^2}\right)^2 |U_{\mathbf{k}'\mathbf{k}} \mathbf{V}|^2 \delta\left(\omega + \frac{E_i - E_f}{\hbar}\right)$$

と表現できる。この際に E_i と E_f は散乱する原子の散乱前と後のエネルギーである。

この散乱断面積は k'/k の因子を含んでおり、最後のデルタ関数は非弾性散乱の際にも勿論エネルギー保存則が成り立つことを意味している。この散乱断面積の式は原子がエネルギーを運動エネルギーとして受けとるときだけではなく、内部自由度のエネルギー変化として受け渡すときにも有効である。この事実を明確にするために行列の要素をもう少し一般化して書くと

$$U_{\mathbf{k}'\mathbf{k}} \cdot \mathbf{V} = \left\langle f \left| \int e^{i(\mathbf{k}' - \mathbf{k}) \cdot \mathbf{r}} U(\mathbf{r}) d\mathbf{r} \right| i \right\rangle$$

と書け、そのときの $|i\rangle$ と $|f\rangle$ は散乱する原子の E_i と E_f のエネルギーをもつ状態を表わす。この行列要素を使うと散乱断面積は

$$\frac{d^2\sigma}{d\Omega d\omega} = \frac{k'}{k} \left(\frac{m_n^*}{2\pi\hbar^2}\right)^2 \left| \left\langle f \left| \int e^{i(\mathbf{k}' - \mathbf{k}) \cdot \mathbf{r}} U(\mathbf{r}) d\mathbf{r} \right| i \right\rangle \right|^2 \delta\left(\omega + \frac{E_i - E_f}{\hbar}\right)$$

と記述できる。

ここまでは一個の原子による非弾性散乱を扱ってきたが、いままでの考察には散乱する原子が一つである条件は不必要であることから、同じ散乱断面積の表記が沢山の原子の集合体にも有効であることが解る。ただ M はマクロな体積になり、 m_n^* はほとんど m_n と等しくなる。そして非弾性散乱の理由としては原子の集合体の内部自由度へのエネルギー移行、すなわち素励起へのエネルギー移行、のみになり、結晶全体へは $M \rightarrow \infty$ と同じになり、弾性散乱になる。

散乱体が N 個の原子の集合体であるときには一つの量子力学的状態にあるのではないので、多数の状態の平均値をとる必要があり、散乱断面積は次の様に書かれる。

$$\frac{d^2\sigma}{d\Omega d\omega} = \frac{1}{N} \frac{k'}{k} \left(\frac{m_n^*}{2\pi\hbar^2} \right)^2 \sum_{i,f} g_i(T) \left| \left\langle f \left| \int e^{i(\mathbf{k}'-\mathbf{k})\cdot\mathbf{r}} U(\mathbf{r}) d\mathbf{r} \right| i \right\rangle \right|^2 \delta\left(\omega + \frac{E_i - E_f}{\hbar}\right)$$

このときの $g_i(T)$ は $|i\rangle$ 状態の熱平衡状態の占有率であり、ボルツマン因子に比例し、

$$g_i(T) = \frac{\exp\left(-\frac{E_i}{k_B T}\right)}{\sum_i \exp\left(-\frac{E_i}{k_B T}\right)}$$

である。

そして中性子の磁気散乱を取り扱う場合には、散乱振幅の計算のところで明らかになったように、中性子のスピン・オペレーター σ がポテンシャルのなかに出現するために行列の要素は中性子の散乱前後のスピン状態 $|\sigma\rangle$ 及び $|\sigma'\rangle$ に依存する。この時にはこのスピン状態に関しても平均値をとらなければならないので、散乱断面積は

$$\frac{d^2\sigma}{d\Omega d\omega} = \frac{1}{N} \frac{k'}{k} \left(\frac{m_n^*}{2\pi\hbar^2} \right)^2 \sum_{i,f} g_i(T) \sum_{\sigma,\sigma'} g_{\sigma} \left| \left\langle \sigma' f \left| \int e^{i(\mathbf{k}'-\mathbf{k})\cdot\mathbf{r}} U(\mathbf{r},\sigma) d\mathbf{r} \right| \sigma i \right\rangle \right|^2 \delta\left(\omega + \frac{E_i - E_f}{\hbar}\right)$$

と記述する事ができ、これが中性子非弾性散乱を議論する上でもっとも基本となる式になる。ここで g_{σ} は散乱前の中性子のスピン状態が σ である確率を表わす。

ここで磁気散乱のみによる相互作用を考慮し、上記と同じく軌道モーメントは無いと仮定して、スピンからのみのモーメントによる散乱をこの式から van-Hove の変形を用いて Heisenberg オペレータを導入し、平均値の定義を

$$\langle \dots \rangle = \sum_i g_i(T) \sum_{\sigma} g_{\sigma} \langle \sigma i | \dots | \sigma i \rangle$$

とすると、上で弾性散乱の場合にスピン・オペレータの期待値を導入した計算と類似して、スピン密度・オペレータを

$$\mathbf{S}(\mathbf{r}) = \sum_j \mathbf{S}_j \delta(\mathbf{r}-\mathbf{r}_j)$$

及びその Fourier 変換したものを

$$\mathbf{S}(\mathbf{Q}) = \int d^3r e^{-i\mathbf{Q}\cdot\mathbf{r}} \mathbf{S}(\mathbf{r}) = \sum_j \mathbf{S}_j e^{-i\mathbf{Q}\cdot(\mathbf{r}-\mathbf{r}_j)}$$

と定義すると、二次微分散乱断面積は非偏極中性子散乱の場合には

$$\frac{d^2\sigma}{d\Omega d\omega} = \frac{k'}{k} (g_N r_e)^2 \int \frac{dt}{2\pi} e^{i\omega t} \langle \mathbf{S}^\perp(\mathbf{Q}, t) \mathbf{S}^\perp(-\mathbf{Q}, 0) \rangle$$

と記述できる。

ここで \mathbf{S}^\perp は上で導入した $\hat{\mathbf{Q}} \times \hat{\mathbf{s}} \times \hat{\mathbf{Q}}$ に匹敵するもので、中性子磁気散乱により観測できる磁気モーメントは散乱ベクトルに垂直な面に投影された成分のみであることを表記する。この式は中性子磁気散乱強度がスピン対相関関数の場所及び時間の Fourier 変換したものに比例することを表わす。これが中性子磁気散乱が磁性物性の研究に大きな役割を果たしてきた理由である。勿論この式のなかには最初に述べた弾性散乱のケース ($t \rightarrow \infty$) も含まれている。スピン対相関関数の時間的变化は非弾性磁気中性子散乱に反映される。

ここでは簡素化のためにスピン・モーメントのみ存在すると仮定したが、軌道モーメントに関しても同じ様な表記が出来、中性子散乱により上記の磁気選択則に従い、両者から成るモーメントの対相関関数を直接観測出来ることを示すことが出来る。

サブゼミではこの中性子磁気散乱の基礎を用いて、磁気秩序及び磁気励起に関する中性子散乱実験例を紹介し、その際に具体的に中性子回折装置、分光装置についても説明する予定である。

参考文献：

中性子散乱に関する参考文献として次の三編を挙げておく。

G.L. Squires, "Introduction to the Theory of Thermal Neutron Scattering", Cambridge University Press, Cambridge, 1978

G.E. Bacon, "Neutron Diffraction", Clarendon Press, Oxford, 1975

星埜禎男、「中性子回折」、実験物理学講座 22、共立出版株式会社、1976